

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-134360

(43)Date of publication of application : 28.05.1996

(51)Int.Cl.

C08L101/00
C08G 59/28
C08G 59/40
C08K 5/15
C08K 5/54
C08L 83/05
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 06-293632

(22)Date of filing : 04.11.1994

(71)Applicant : KANEGAFUCHI CHEM IND CO LTD

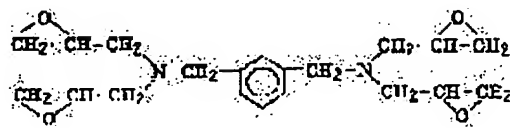
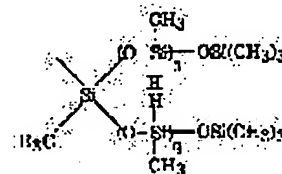
(72)Inventor : SHIMADA KAZUKO
TSUNEMI HIDENARI
ITO YASUSHI
HIRABAYASHI TAMA
HAMAGUCHI SHIGEKI

(54) CURABLE COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a composition containing an organic polymer, an organic compound, a hydroxylating catalyst, an epoxy-based compound and a silane coupling agent and capable of providing a cured product exhibiting rubber elasticity and excellent in curing property, adhesiveness and low stress and useful for sealing agents, etc.

CONSTITUTION: This composition consists essentially of (A) an organic polymer comprising a polyolefin-based (co)polymer, etc., containing an unsaturated group and having 500-60000 (preferably 700-15000) number-average molecular weight, (B) an organic compound containing plural hydrosilyl groups, preferably having a group of formula I [(p+q) is 2-4], etc., (C) a hydrosilylating catalyst such as a platinum-olefin complex, (D) an N-containing epoxy-based compound containing glycidylamino group of formula II, etc., and (E) a silane coupling agent, preferably having vinyl group, isocyanate group and epoxy group, e.g. silane coupling agent of the formula $\text{CH}_2=\text{CHSi}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_2$.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.02.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3436991

[Date of registration] 06.06.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

This Page Blank (uspto)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-134360

(43) 公開日 平成8年(1996)5月28日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 101/00	K C D			
C 0 8 G 59/28	N H S			
59/40	N J M			
C 0 8 K 5/15	K A W			
		6921-4E	H 0 1 L 23/ 30	R
		審査請求	未請求	請求項の数10 F D (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平6-293632

(22) 出願日 平成6年(1994)11月4日

(71) 出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72) 発明者 島田 和子

大阪府摂津市香露園27-17 ホワイティ18-307号室

(72) 発明者 常深 秀成

兵庫県神戸市垂水区舞子台2丁目9-30-1220

(72) 発明者 伊藤 裕史

兵庫県神戸市須磨区北落合1-1-324-403

(74) 代理人 弁理士 萩野 平 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 硬化性組成物

(57) 【要約】

【構成】 (A) 分子中に少なくとも1個の不飽和基を含有し、数平均分子量が500~60000である有機重合体、(B) 分子中に少なくとも2個のヒドロシリル基を含有する有機化合物、(C) ヒドロシリル化触媒、(D) 窒素原子を含有するエポキシ系化合物、(E) シランカップリング剤を必須成分としてなる硬化性組成物。

【効果】 硬化物がゴム弾性を示し、硬化性及び各種基材に対する接着性に優れ、特に湿熱処理後も接着性が低下しない硬化性組成物を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記の成分(A)、(B)、(C)、(D)及び(E)を必須成分としてなる硬化性組成物；
 (A) 分子中に少なくとも1個の不飽和基を含有し、数平均分子量が500～60000である有機重合体
 (B) 分子中に少なくとも2個のヒドロシリル基を含有する有機化合物
 (C) ヒドロシリル化触媒
 (D) 窒素原子を含有するエポキシ系化合物
 (E) シランカップリング剤

【請求項2】 (B)成分のヒドロシリル基を含有する有機化合物の骨格が主として炭化水素からなる請求項1記載の硬化性組成物。

【請求項3】 (D)成分のエポキシ系化合物がグリシジルアミノ基を含有する請求項1記載の硬化性組成物。

【請求項4】 (A)成分の不飽和基に対する(B)成分のヒドロシリル基の比率がモル比で、0.02～2である請求項1、2または3記載の硬化性組成物。

【請求項5】 (A)成分の不飽和基を含有する有機重合体の骨格が炭化水素系重合体である請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【請求項6】 (A)成分の不飽和基を含有する有機重合体の骨格がポリエーテル系重合体である請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【請求項7】 (A)成分の不飽和基を含有する有機重合体の骨格がポリエステル系重合体である請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【請求項8】 (A)成分の不飽和基を含有する有機重合体の骨格がアクリル系重合体である請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【請求項9】 (A)成分の不飽和基を含有する有機重合体の骨格が飽和炭化水素系重合体である請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【請求項10】 (E)成分のシランカップリング剤がビニル基、アリル基、エポキシ基、イソシアナート基、メタクリロキシ基及びメタクリロイル基からなる群から選択される少なくとも1種を含有する請求項1、2、3または4記載の硬化性組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、硬化性に優れ、その硬化物がゴム状物質であり、低応力性及び接着性に優れる、ヒドロシリル化反応により付加型硬化する硬化性組成物に関する。産業上の利用分野としては、電気・電子部品等の封止材用組成物や各種コーティング材、ガスケット材料、シーリング材、成形材料、塗料用の組成物として用いることができる。中でも炭化水素系重合体骨格のものは、さらに低透湿性、低吸湿性、耐熱性、耐候性等を有し、半導体素子のドリップコーティングやポッティング用液状封止材、コンデンサー等の各種電子部品の

ポッティング材、コーティング材、太陽電池裏面封止材の電子部品用の封止材等の組成物として用いることができる。

【0002】

【発明が解決しようとする課題】従来、硬化してゴム状物質を生成する硬化性組成物としては、各種のものが開発されている。中でも深部硬化性に優れた硬化系として、末端もしくは分子鎖中に、1分子中に平均2個またはそれ以上のビニル基を持つポリオルガノシロキサンを、珪素原子に結合する水素原子を1分子中に2個以上有するポリオルガノヒドロジェンシロキサンで架橋するものが開発され、その優れた耐候性、耐熱性、耐水性を利用して、シリコン系シーリング材、ポッティング材として使用されている。しかし、この系はコストが高い、接着性が悪い、かびが発生しやすい等の理由から、その用途に制限を受けている。また、このような高価なポリオルガノシロキサンを使用しない系として、分子中に少なくとも1個のアルケニル基をもつ有機重合体を分子中に少なくとも2個のヒドロシリル基を有する炭化水素系硬化剤で架橋する材料が、特開平3-200807、特開平3-95266等に開示されている。しかしながら、これらの材料は、硬化性やゴムとしての機械的強度、低応力性等に優れているものの、金属やガラス、プラスチック材料等への接着性が不十分であるという問題があった。また、これらの接着性改良の目的で、上記の組成物に粘着付与樹脂を加えた粘着性組成物(特開平4-145188)やシランカップリング剤を加えた接着剤組成物(特開平4-185687)が開示されているが、これらは接着性改良効果はあるものの十分とは言えなかった。

【0003】

【課題を解決するための手段】本発明の硬化性組成物は、上記の課題を解決しようと鋭意研究を重ねた結果、下記の成分(A)、(B)、(C)、(D)及び(E)を必須成分としてなる硬化性組成物が上記課題を解決することを見だし、本発明を完成させたものである。

【0004】即ち、本発明は、

(A) 分子中に少なくとも1個の不飽和基を含有し、数平均分子量が500～60000である有機重合体

(B) 分子中に少なくとも2個のヒドロシリル基を含有する有機化合物

(C) ヒドロシリル化触媒

(D) 窒素原子を含有するエポキシ系化合物

(E) シランカップリング剤

を必須成分とする、硬化性組成物を内容とするものである。本発明は、(A)、(B)、(C)を含む硬化性組成物の接着性改良を目的として、(D)の窒素原子を含有するエポキシ系化合物と(E)のシランカップリング剤の併用の接着付与剤を添加することにより、それぞれを単独に加えても達成できない接着改良効果が得られる

ことが特徴である。

【0005】以下本発明を詳細に説明する。本発明に用いる(A)成分である分子中に少なくとも1個の不飽和基を含有し、数平均分子量が500~60000である有機重合体としては、各種主鎖骨格を持つものを使用することができる。まず、炭化水素系重合体としては、炭素数1~6のオレフィン系化合物すなわちエチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブテン、2-ブテン、2-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、ヘキセン、ビニルシクロヘキサン等のようなオレフィン系化合物を単独重合あるいは共重合させた重合体、例えば、ポリイソブチレン、エチレン-プロピレン共重合体等、または、ジェン系化合物の単独重合体または共重合体、すなわちポリイソブレンまたはその水素添加物、ポリブタジエンまたはその水素添加物、イソブチレンとイソブレンの共重合体またはその水素添加物、イソブレンとブタジエンの共重合体またはその水素添加物等を使用することができる。これらの重合体のうち、末端に官能基を導入しやすい、分子量を制御しやすい等の理由から、ポリイソブレン、ポリブタジエン、ポリイソブチレン系の重合体が好ましい。

【0006】ポリエーテル系重合体としては、例えばポリオキシエチレン、ポリオキシプロピレン、ポリオキシテトラメチレン、ポリオキシエチレン-ポリオキシプロピレン共重合体等が好適に使用される。ポリエステル系重合体としては、アジピン酸、アゼライン酸等の2塩基酸とエチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール等のジオールを縮重合したものや、ε-カプロラク톤のようなラクトン類を開環重合させたポリエステル等を用いることができる。アクリル系重合体としてはエチルアクリレート、ブチルアクリレート、アリルアクリレート等のアクリルモノマーをラジカル共重合して得られる重合体や、これらのアクリルモノマーとメチルメタクリレート、スチレン、アクリロニトリル等を共重合した重合体等を用いることができる。

【0007】その他の有機重合体としては、ナイロン系重合体やポリサルファイド系重合体、ポリフェニレンオキサイド系重合体、ポリカーボネート系重合体、ジアリルフタレート系重合体等が例示される。前記有機重合体の数平均分子量は500~60000である。特に700~15000程度が取扱いの点から好ましい。数平均分子量が500未満であると硬化物の伸びが悪くなり、また、60000を越えると作業性が悪くなり現実的でない。

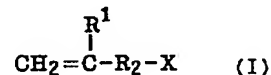
【0008】本発明の(A)成分の不飽和基は、1分子中に少なくとも1個以上必要である。硬化性及び硬化物の機械特性を満足するためには1、2個以上が好ましい。十分な硬化速度及び高いゲル分率を得るためには

1、5個以上にするのが最も好ましい。不飽和基を導入する方法については、種々提案されているものを用いることができる。これらの方法を大きく分けると、重合後に導入する方法と重合中に導入する方法がある。

【0009】重合後に不飽和基を導入する方法としては、例えば末端あるいは側鎖に水酸基を有する有機重合体を出発原料に用い、この水酸基を-ONaや-OKなどのオキシメタル基にしたのち、一般式(I)

【0010】

【化1】



【0011】(Xは、ハロゲン原子、R₁は水素または炭素数1~20の1価の炭化水素基、R₂は、-R₃、-R₃-OC(=O)-または-R₃-C(=O)-[R₄は炭素数1~20までの2価の炭化水素基で、好ましい具体例としては、アルキレン基、シクロアルキレン基、アリーレン基、アラルキレン基が挙げられる]で示される2価の有機基である。)で示される有機ハロゲン化合物を反応させることにより、不飽和基を有する有機重合体が製造される。

【0012】主鎖または側鎖の水酸基をオキシメタル基にする方法としては、Na、Kのようなアルカリ金属、NaHのような金属水素化物、NaOCH₃のような金属アルコキシド、NaOH、KOHのようなアルカリなどと反応させる方法が挙げられる。上記方法では、出発原料として用いた水酸基含有有機重合体とほぼ同じ分子量をもつ不飽和基含有有機重合体が得られるが、より高分子量の重合体を得たい場合には一般式(I)の化合物と反応させる前にオキシメタル化合物と多価有機ハロゲン化合物例えば塩化メチレン、ビス(クロロメチル)ベンゼン等を反応させて分子量を増大させた後、(I)と反応させると良い。

【0013】上記一般式(I)で示される有機ハロゲン化合物の具体例としては、アリルクロライド、アリルブロマイド、ビニル(クロロメチル)ベンゼン、アリル(クロロメチル)ベンゼン、アリル(ブロモメチル)ベンゼン、アリル(クロロメチル)エーテル、アリル(クロロメトキシ)ベンゼン、1-ブテニル(クロロメチル)エーテル、1-ヘキセニル(クロロメトキシ)ベンゼン、アリルオキシ(クロロメチル)ベンゼン等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。この中で最も好ましいものは、コスト、反応性の点からアリルクロライドである。

【0014】重合中に不飽和基を導入する方法としては、例えば開始剤兼連鎖移動剤を用いるUSP4316973に示す方法や、特開昭63-105005に示す方法等を用いることができる。本発明の(B)成分である、分子中に少なくとも2個のヒドロシル基を有する

10

20

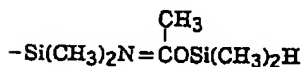
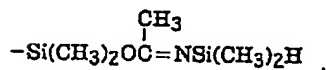
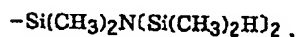
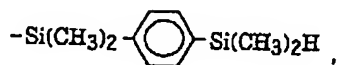
30

40

50

有機化合物としては特に制限はない。ここで、ヒドロシリル基1個とはSiH基1個をさす。従って、同一Siに水素原子が2個結合している場合はヒドロシリル基2個と計算する。この有機化合物において、ヒドロシリル基を含む基を具体的に例示するならば、 $-\text{Si}(\text{H})_n(\text{CH}_3)_{3-n}$ 、 $-\text{Si}(\text{H})_n(\text{C}_2\text{H}_5)_{3-n}$ 、 $-\text{Si}(\text{H})_n(\text{C}_6\text{H}_5)_{3-n}$ ($n=1\sim3$)、 $-\text{SiH}_2(\text{C}_6\text{H}_5)$ などのケイ素原子1個だけ含有する基、 $-\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{H}$ 、 $-\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{H}$ 、 $-\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{SiCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{H}$ 、 $[\text{O}015]$

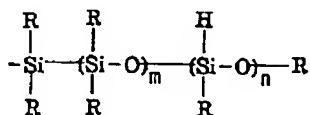
【化2】



【0016】などのケイ素原子を2個含む基、

【0017】

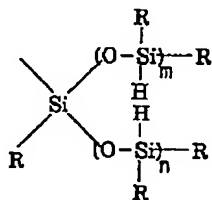
【化3】



【0018】(式中、RはH、OSi(CH₃)₂、および炭素数が1～10の有機基より選ばれる基であり各々のRは同じでも異なってもよい。m、nは正の整数で且つ、2 ≤ m + n ≤ 50)

【0019】

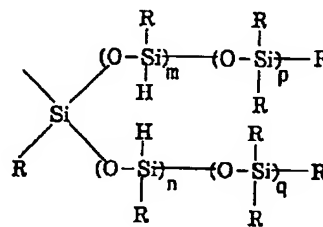
【化4】



【0020】(R, m, nは上記に同じ)

【0021】

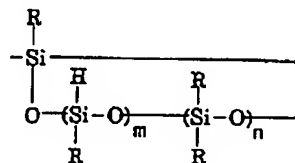
【化5】



【0022】(式中、Rは上記に同じ、mは正の整数、n、p、qは0または正の整数で、且つ $1 \leq m+n+p+q \leq 50$)

【0023】

【化6】



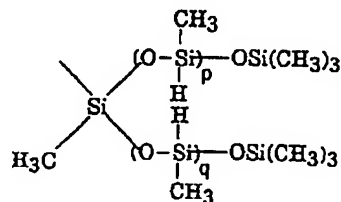
【0024】(式中Rは上記に同じ、mは正の整数、nは0または正の整数で、且つ $2 \leq m+n \leq 50$)などで示される鎖状、枝分かれ状、環状の各種の多価ハイドロジェンシロキサンより誘導された基などが挙げられる。

上記の各種のヒドロシシル基含有基のうち、本発明のヒドロシシル基含有化合物の、(A)成分に対する相溶性を損なう可能性が少ないという点から、ヒドロシシル基を構成する基の部分の分子量は500以下が望ましく、

30 さらにヒドロシル基の反応性も考慮すれば、下記のもの
 のが好ましい。

【0025】

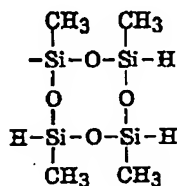
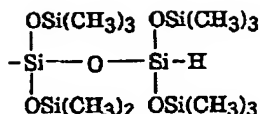
【化7】



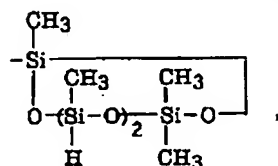
40 【0026】(式中、 p は正の整数、 q は0または正の整数であり、かつ $2 \leq p+q \leq 4$)

【0027】

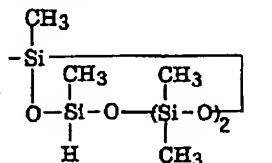
【化8】



【0028】



* * 【化9】

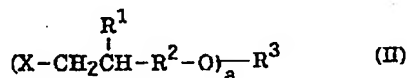


【0029】同一分子中にヒドロシリル基含有基が2個以上存在する場合には、それらは互いに同一でも異なっても構わない。(B)成分中に含まれるトータルのヒドロシリル基の個数については、少なくとも、1分子中に2個あれば良いが、2～15個が好ましく、3～12個が特に好ましい。本発明のヒドロシリル基含有化合物を、ヒドロシリル化触媒存在下に、アルケニル基を含有する化合物((A)成分)と混合してヒドロシリル化反応により硬化させる場合には、該ヒドロシリル基の個数が2より少ないと硬化不良を起こす場合が多い。また、該ヒドロシリル基の個数が15より多くなると、(B)成分の安定性が悪くなり、そのうえ、硬化後も多量のヒドロシリル基が硬化物中に残存し、ポイドやクラックの原因となる。

【0030】(B)成分のヒドロシリル基含有化合物としては特に制限はないが、上記ヒドロシリル基含有基を有する有機化合物が挙げられ、低分子量のものから重合体にいたる各種の化合物を用いることができる。具体的に例示すると、式(II)

【0031】

【化10】

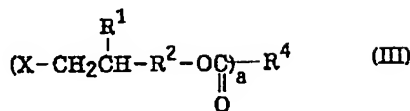


【0032】(式中、Xは上記のヒドロシリル基含有基、R¹は水素またはメチル、R²は炭素数1～20の2価の炭化水素基で1個以上のエーテル結合が含有されていてよい。R³は脂肪族または芳香族の有機基、aは正の整数。)で表されるエーテル結合を有する化合物、式(III)

【0033】

【化11】

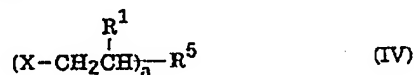
20



【0034】(式中、Xは上記のヒドロシリル基含有基、R¹は水素またはメチル基、R²は炭素数1～20の2価の炭化水素基で1個以上のエーテル結合を含有していてよい。R⁴は脂肪族または芳香族の有機基、aは正の整数。)で表されるエステル結合を有する化合物、式(IV)

【0035】

30 【化12】

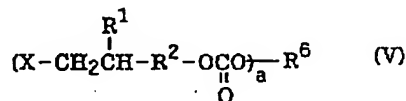


【0036】(式中、Xは上記のヒドロシリル基含有基、R¹は水素またはメチル基、R⁵は脂肪族または芳香族の有機基、aは正の整数)で表される炭化水素系の化合物、さらに、式(V)

【0037】

【化13】

40



【0038】(式中、Xは上記のヒドロシリル基含有基、R¹は水素またはメチル基、R²は炭素数1～20の2価の炭化水素基で1個以上のエーテル結合を含有していてよい。R⁶は脂肪族または芳香族の有機基、aは正の整数)で表されるカーボネート結合を有する化合物が挙げられる。(B)成分として有機重合体を用いる場合、式(II)～(V)のR¹～R⁶の有機基は重合体残

50

基となるが、この残基は、線状でも枝分かれ状でもよく、分子量は50000以下の任意のものが好適に使用できるが、20000以下のものが特に好ましい。

【0039】(B)成分のヒドロシリル基は、分子末端にあっても分子中にあっても良いが、本発明の組成物を用いてゴム状硬化物を作製する場合には、分子末端にある方が有効網目鎖長が長くなるので好ましい。(B)成分の製造方法としては特に制限はなく、任意の方法を用いればよい。例えば、(i)分子内にSi-Cl基をもつ有機化合物をLiAlH₄、NaBH₄などの還元剤で処理して該化合物中のSi-Cl基をSi-H基に還元する方法、(ii)分子内にある官能基Xを持つ有機化合物と分子内に上記官能基と反応する官能基Y及びヒドロシリル基を同時にもつ化合物とを反応させる方法、(iii)アルケニル基を持つ有機化合物に対してヒドロシリル基を持つポリヒドロシラン化合物を選択ヒドロシリル化することにより、反応後もヒドロシリル基を該化合物の分子中に残存させる方法などが考えられる。これらのうち(iii)の方法が特に好ましい。

【0040】本発明の(C)成分であるヒドロシリル化触媒については、特に制限はなく、任意のヒドロシリル化触媒を用いることができる。具体的に例示すれば白金の単体、アルミナ、シリカ、カーボンブラック等の単体に固体白金を担持させたもの；白金-ビニルシロキサン錯体(例えばPt₂(ViMe₂SiOSiMe₂V i)₂、Pt[(MeViSiO)₂]_n)；白金-ホ

スフィン錯体(例えば、Pt(PPh₃)₄、Pt(PBu₃)₄)；白金-ホスファイト錯体(例えば、Pt[P(OPh)₃]₄、Pt[P(OBu)₃]₄)；(式中、Meはメチル基、Buはブチル基、Viはビニル基、Phはフェニル基を表し、n、mは整数を表す)

Pt(acac)₃、またAshbyの米国特許第3159601及び3159662号明細書中に記載された白金-炭化水素複合体、並びにLamoureuxの米国特許第3220972号明細書中に記載された白金アルコール触媒も挙げられる。

【0041】また、白金化合物以外の触媒の例としては、Rh/Al₂O₃等が挙げられる。これらの触媒は単独で使用してもよく、2極以上併用することもできる。触媒活性の点から、白金-オレフィン錯体、白金-ビニルシロキサン錯体、Pt(acac)₃等が好ましい。本発明の(C)成分であるヒドロシリル化触媒の量としては特に制限はないが、(A)成分中の不飽和基1molに対して10⁻¹~10⁻⁸molの範囲で用いるのがよい。好ましくは10⁻³~10⁻⁶molの範囲で用いるのがよい。

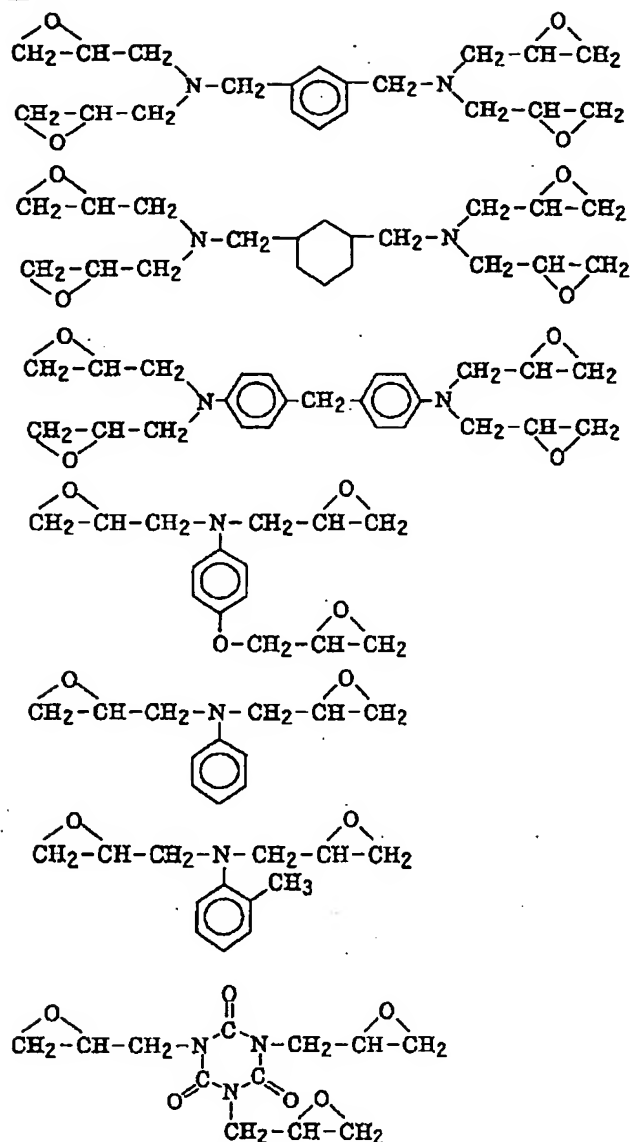
【0042】本発明の(D)成分である窒素原子を含有するエポキシ系化合物については特に制限はないが、より具体的には、

【0043】

【化14】

11

12



【0044】に挙げる化合物を使用する事ができる。接着性付与のためには(D)成分中にグリシジルアミノ基が含まれていることが好ましく、特にグリシジルアミン系が好ましく、ジグリシジルアミノ基が2個以上含まれていると更に好ましい。添加量は特に制限はないが、

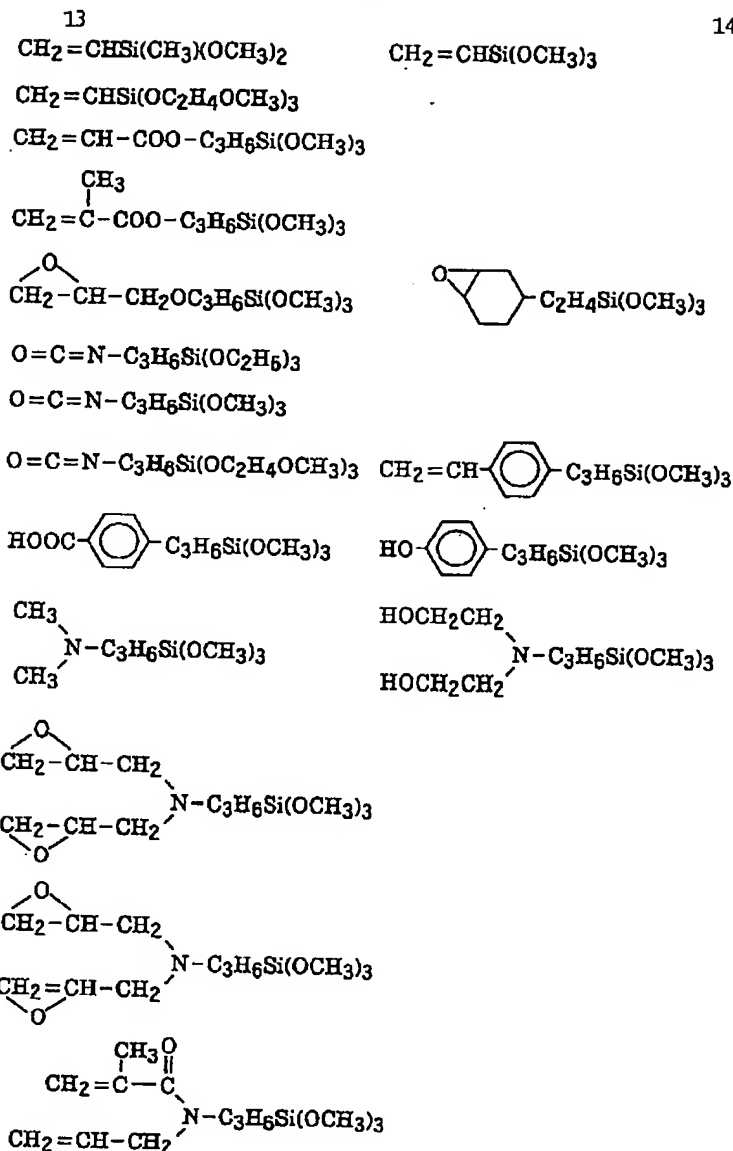
(A)成分重合体100重量部に対して0.01~20重量部、好ましくは0.1~5重量部の割合で使用される。(D)成分は単独で使用しても、2種以上併用して

も良い。

【0045】本発明の(E)成分であるシランカップリング剤についても付加型硬化させる際に硬化阻害の問題なく使用できる。(E)成分についても特に制限はないが、より具体的には、

【0046】

【化15】



【0047】に挙げる化合物を使用することができる。接着性付与のためには(E)成分がビニル基、アリル基、エポキシ基、イソシアナート基、メタクリロキシ基及びメタクリロイル基からなる群から選択される少なくとも1種を含有することが好ましい。ビニル基、イソシアナート基、エポキシ基を含有する場合がさらに好ましい。(E)成分は単独で使用しても、2種以上併用しても良い。添加量は特に制限はないが、(A)成分重合体100重量部に対して0.01~20重量部、好ましくは0.1~5重量部の割合で使用される。

【0048】本発明の(A)、(B)、(C)、(D)及び(E)成分を混合した液状硬化性組成物を加熱すると硬化物が得られる。硬化条件については特に制限はないが、一般に30~200℃、好ましくは50~150℃で10秒~2時間程度で硬化させる。ただし、100℃以下で硬化させた場合は130℃以上で1時間程度後硬化させると好ましい。150℃以上で後硬化させると

さらに好ましい。

【0049】本発明の硬化性組成物には、必要に応じて各種配合物を添加することができる。添加成分の例としては、可塑剤、接着性改良剤、保存安定性改良剤、充填剤、老化防止剤、紫外線吸収剤、金属不活性化剤、オゾン劣化防止剤、耐光安定化剤、ラジカル重合禁止剤、過酸化分解剤、滑剤、顔料、発泡剤等を挙げることができる。

【0050】可塑剤としては、一般に用いられている可塑剤を用いることができるが、本発明に用いる炭化水素系重合体と相溶性のよいものが好ましい。可塑剤の具体例としては、ポリブテン、水添ポリブテン、 α -メチルスチレンオリゴマー、ポリブタジエン、水添ポリブタジエン、部分水素添加ターフェニル、パラフィン油、ナフテン油、アタクティックポリプロピレンなどであり、これらのなかでも不飽和結合を含まない水添ポリブテン、水添ポリブタジエン、パラフィン油、ナフテン油、アタ

クティックポリプロピレンなどの炭化水素系化合物が好ましい。

【0051】また、前述の接着性付与剤と併用して他の接着性付与剤を添加しても良い。クマロンーインデン樹脂、ロジンエステル樹脂、テルペンーフェノール樹脂等の粘着付与剤や α -メチルスチレンービニルトルエン共重合体、ポリエチルメチルスチレン、アルキルチタネート類等も併用して用いることができる。保存安定性改良剤としては、(C)成分の触媒活性を室温保存時のみ制御するものが好ましく、2-ベンゾチアゾリルサルファイド、ベンゾチアゾール、チアゾール、ジメチルアセチレンジカルボキシレート、ジエチルアセチレンジカルボキシレート、BHT、ブチルヒドロキシアニソール、ビタミンE、3-メチル-1-ブテン-3-オール、アセチレン性不飽和基含有オルガノシロキサン、アセチレンアルコール、3-メチル-1-ブテン-3-オール、3-メチル-1-ペンテン-3-オール、ジアリルマレート、ジアリルマレート、ジエチルマレート、ジエチルマレート、ジメチルマレート等を用いることができる。保存安定性改良剤を用いる場合の使用量は、触媒1 mol に対し0.1~1000 mol、好ましくは1~200 molである。保存安定性改良剤の使用量が上記の量の上限を越えた場合には、硬化遅延が起こるばかりでなく、硬化不良を起こし、硬化物に要求される物性を満足させることができない。逆に保存安定性改良剤の使用量が上記の量の下限を下回った場合には、組成物の保存安定性を改良するという目的を達成することができない。

【0052】

【実施例】以下、実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【製造例1】

アリル基末端水添ポリイソブレンオリゴマーの合成
両末端に水酸基を有する水素添加ポリイソブレン（出光石油化学（株）製、商品名：エポール）300 gにトルエン50 mlを加え共沸脱気により脱水した。t-BuOK 4.8 gをトルエン200 mlに溶解したものを添加し、*

○ポリテールの代表的物性値（ポリテール技術資料より）

：水酸基含有量 (meq/g)	0.73~0.98
：粘度 (poise/30℃)	500~1500
：粘度 (poise/80℃)	6~19
：密度 (g/cm ³)	0.87 (25℃)

【製造例3】 不飽和末端ポリイソブテンオリゴマーの合成

1 Lの耐圧ガラスオートクレーブに攪拌用羽根、三方コック及び真空ラインを取り付けて、真空ラインで真空にしながら重合容器を100℃で1時間加熱することにより乾燥させ、室温まで冷却後、三方コックを用いて窒素で常圧に戻した。その後、三方コックの一方から窒素を流しながら注射器を用いてオートクレーブに水素化カルシウム処理により乾燥させた主溶媒である1,1-ジク

* 80℃で3時間反応させた。温度を60℃に下げ、アリルクロライド47 mlを約30分間かけて滴下した。滴下終了後、そのままの温度で2時間反応させた。反応終了後、生成した塩を吸着させるために反応溶液にケイ酸アルミニウム30 gを加え、2時間攪拌した。濾過精製により約250 gのアリル末端水添ポリイソブレンを粘稠な液体として得た。¹H-NMR分析により末端の90%にアリル基が導入されている事が確認された。ヨウ素価より求めたオレフィンのモル数は0.11 mol/100 gであった。元素分析より求めた塩素含量は0.1%未満であった。またE型粘度計による粘度は約330ポイズ(23℃)であった。

【0053】○エポールの代表的物性値（エポール技術資料より）

：水酸基含有量 (meq/g)	0.90
：粘度 (poise/30℃)	700
：平均分子量 (VPO測定)	2500

【製造例2】 アリル基末端水添ポリブタジエンオリゴマーの合成

両末端に水酸基を有する水素添加ポリブタジエン（三菱化成（株）製、商品名：ポリテール）300 gにトルエン50 mlを加え共沸脱気により脱水した。t-BuOK 41 gをトルエン200 mlに溶解したものを注入し、80℃で3時間反応させた。温度を60℃に下げ、アリルクロライド40 mlを約30分間かけて滴下した。滴下終了後、そのままの温度で2時間反応させた。反応終了後、生成した塩を吸着させるために反応溶液にケイ酸アルミニウム30 gを加え、2時間攪拌した。濾過精製により約240 gのアリル末端水添ポリブタジエンを粘稠な液体として得た。¹H-NMR分析により末端の85%にアリル基が導入されている事が確認された。ヨウ素価より求めたオレフィンのモル数は0.10 mol/100 gであった。元素分析より求めた塩素含量は0.1%未満であった。またE型粘度計による粘度は約300ポイズ(23℃)であった。

【0054】

ロロエタン40 mlを導入した。つぎに蒸留、精製したアリルトリメチルシラン5 mmolを添加し、更にトリクロライド2 mmolを溶解させた10 mlの1,1-ジクロロエタン溶液を添加した。

【0055】次に酸化バリウムを充填したカラムを通過させることにより脱水したイソブテン7 gが入っているニードルバルブ付き耐圧ガラス製液化ガス採取管を三方コックに接続した後、容器本体を-70℃のドライアイス-アセトンバスに浸漬し、重合容器内部を攪拌しながら

ら1時間冷却した。冷却後、真空ラインにより内部を減圧した後、ニードルバルブを開け、イソブテンを耐圧ガラス製液化ガス採取管から重合容器に導入した。その後三方コックの一方から窒素を流すことにより常圧に戻し、更に攪拌下1時間冷却を続け重合容器内を -10°C まで昇温した。

【0056】次に TiCl_4 、3.2g (10mmol)を注射器を用いて三方コックから添加して重合を開始させ、60分経過した時点で予め 0°C 以下に冷却しておいたメタノールを添加することにより反応を終了させた。その後反応混合物をナス型フラスコに取り出し、未反応のイソブテン、1,1-ジクロロエタン、アリルトリメチルシラン及びメタノールを留去し、残ったオリゴマーを100mlのn-ヘキサンに溶解後、中性になるまでこの溶液の水洗を繰り返した。その後、このn-ヘキサン溶液を20mlまで濃縮し、300mlのアセトンにこの濃縮溶液をそそぎ込むことによりオリゴマーを沈澱分離させた。

【0057】こうして得られたオリゴマーを再び100mlのn-ヘキサンに溶解させ、無水硫酸マグネシウムで乾燥させ、濾過し、n-ヘキサンを減圧留去することにより末端にアリル基を有するポリイソブテンオリゴマーを得た。

【製造例4】 ヒドロシリル基含有炭化水素系硬化剤の合成

攪拌可能な2Lのガラス製反応容器中に1,3,5,7-テトラメチルシクロテトラシロキサン500g (2.08mol)、トルエン600g、ビス(1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン)白金錯体触媒 (8.0×10^{-4} mol)を入れ、窒素下 80°C に加熱した。十分な攪拌を加えながら1,9-デカジエン28.7g (0.208mol)とトルエン58gの混合物を1時間かけて添加した。全量添加後、ガスクロマトグラフィーで1,9-デカジエンの残存量を定量し、消失するまで 80°C で攪拌を続けた。反応混合物を濃縮し、残留物として110gのSi-H基含有炭化水素系硬化剤を得た。

【製造例5】 アリル基末端ポリオキシプロピレンオリゴマーの合成

特開昭53-134095に開示された方法に従って、アリル基末端ポリオキシプロピレンオリゴマーを合成した。平均分子量3000である市販のポリオキシプロピレングリコールと粉末苛性ソーダを 60°C 攪拌し、プロモクロメタンを加えて反応を行い、ジャンプ反応により分子量を増大させた。次に、アリルクロライドを加えて、 110°C で末端の水酸基をアリルエーテル化した。これを珪酸アルミニウムにより処理して、アリル基末端ポリオキシプロピレンオリゴマーを得た。このオリゴマーの数平均分子量は、7850であり、ヨウ素価から求めた末端のアリル化率は91%であった。また、B型粘

度計による粘度は、 400 ポイズ (25°C)であった。

【製造例6】 アリル基末端ポリカプロラクトンオリゴマーの合成

303g (0.1mol)の末端水酸基ポリカプロラクトン(数平均分子量3030、水酸基当量1530)、24.4gのピリジン、300mlのTHFを、攪拌棒、温度計、滴下ロート、窒素吹き込み管、冷却器を付設した4つ口フラスコに仕込み、室温下、滴下ロートより32gのクロルギ酸アリルを徐々に滴下した。滴下終了後、 50°C に加熱して、3時間攪拌した。生成した塩を濾別した後、150mlのトルエンを添加し、200mlの塩酸水溶液で洗浄、中和、濃縮することによりアリル基末端ポリカプロラクトンを得た。得られたオリゴマーの数平均分子量は、VPO測定で3200であった。ヨウ素化の測定より、末端のアリル化率は98%であった。

【製造例7】 側鎖にアリル基をもつアクリルオリゴマーの合成

攪拌棒、滴下ロート、温度計、三方コック、冷却器を備えた1Lの4つ口フラスコを準備した。次に窒素雰囲気下でトルエン20mlを仕込んだ。25.6gのn-ブチルアクリレート、2.52gのアリルメタクリレート、0.81gのn-ドデシルメルカプタン、1.0gのアゾビスイソブチロニトリル、100mlのトルエンからなるモノマーのトルエン溶液を滴下ロートに仕込み、トルエン還流条件下で、約1時間かけて滴下した。滴下終了後、さらに2時間攪拌反応させた。反応終了後、珪酸アルミニウムで処理した後、濾過助剤を用いて吸引濾過することにより透明な溶液を得た。これより、溶媒を加熱減圧留去して淡黄色の粘ちょうなオリゴマー26gを得た。分子量は、VPOで3900、ヨウ素価によるアリル基のモル数は、 $0.154\text{mol}/100\text{g}$ であり、重合体1分子中のアリル基は平均6個であるアクリルオリゴマーが合成できた。

【実施例1】製造例1で得られた(A)成分及び製造例4で得られた(B)成分を(A)成分の不飽和基量と(B)成分中のSi-H基量とが同じになるように秤量し、更に(C)成分として白金-ビニルシロキサン触媒(キシレン溶液)を白金が(A)成分中の不飽和基のモル数に対して 3×10^{-4} モルeqになるように秤量し、更に(D)成分として1,3-ビス(N,N-ジグリシジルアミノメチル)シクロヘキサン(三菱瓦斯化学(株)製、商品名:TETRAD-C、以下TETRAD-Cと略する)を(A)成分100重量部に対して3重量部添加し、更に(E)成分として α -イソシアナートプロピルトリエトキシシラン(チッソ(株)製、商品名:1-7840)を(A)成分100重量部に対して3重量部添加し、均一に混合した後、該組成物を各種基材の上に塗布し、 130°C で10分間更に 150°C で60分間加熱して硬化させた。

【0058】こうして得られた試験片について常態及び

プレッシャークッカー（PCT）処理後（121℃、2気圧、20時間処理後）の接着性を評価した。なお、接着性評価はJISK6850規定の引張剪断接着強さ試験方法及びJISK5400規定の付着性評価方法の中の碁盤目テープ法により評価した。被着体としては銅（厚み：1.6mm）、アルミニウム（厚み：1.6mm）、ガラス（厚み：2.8mm）、ポリイミド（厚み：0.1mm）を用いた。なお、それぞれの被着体はJISK6848規定の方法で表面処理した。

〔実施例2〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をビニルトリス（β-メトキシエトキシ）シラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-172）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例3〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をγ-グリシドキシプロビルトリメトキシシラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-187）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例4〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をN, N, N', N'-テトラグリシジル-m-キシレンジアミン（三菱瓦斯化学（株）製、商品名：TETRAD-X、以下TETRAD-Xと略す）とし、（E）成分をγ-イソシアナートプロビルトリエトキシシラン（チッソ（株）製、商品名：I-7840）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例5〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Xとし、（E）成分をビニルトリス（β-メトキシエトキシ）シラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-172）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例6〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Xとし、（E）成分をγ-グリシドキシプロビルトリメトキシシラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-187）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔0059〕実施例1～6の結果を表1に示す。

〔比較例1〕実施例1と同様にして、ただし（D）及び（E）成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例2〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例3〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分をTETRAD-Xとし、（E）成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例4〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分を配合せず、（E）成分をγ-イソシアナートプロビルトリエトキシシラン（チッソ（株）製、商品名：I-7840）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例5〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分を配合せず、（E）成分をビニルトリス（β-メトキシエトキシ）シラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-172）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例6〕実施例1と同様にして、ただし（D）成分を配合せず、（E）成分をγ-グリシドキシプロビルトリメトキシシラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-187）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔0060〕比較例1～6の結果を表2に示す

接着性評価は（A）成分として、製造例1で得られたオリゴマー以外に製造例2及び3で得られたオリゴマーについても実施した。なお、（B）成分としては共通で製造例4で得られた硬化剤を用いた。

〔実施例7〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例2で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をγ-イソシアナートプロビルトリエトキシシラン（チッソ（株）製、商品名：I-7840）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例8〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例2で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をビニルトリス（β-メトキシエトキシ）シラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-172）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例9〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例2で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をγ-グリシドキシプロビルトリメトキシシラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-187）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例10〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例3で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をγ-イソシアナートプロビルトリエトキシシラン（チッソ（株）製、商品名：I-7840）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例11〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例3で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をビニルトリス（β-メトキシエトキシ）シラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-172）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例12〕実施例1と同様にして、ただし（A）成分を製造例3で得られたオリゴマーとし、（D）成分をTETRAD-Cとし、（E）成分をγ-グリシドキシプロビルトリメトキシシラン（日本ユニカー（株）製、商品名：A-187）として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔0061〕実施例7～12の結果を表3に示す。

〔比較例 7〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 2 で得られたオリゴマーとし、(D) 及び (E) 成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 8〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 2 で得られたオリゴマーとし、(D) 成分を TETRAD-C とし、(E) 成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 9〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 2 で得られたオリゴマーとし、(D) 成分を配合せず、(E) 成分をビニルトリス (β-メトキシエトキシ) シラン (日本ユニカー (株) 製、商品名: A-172) として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 10〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 3 で得られたオリゴマーとし、(D) 及び (E) 成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 11〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 3 で得られたオリゴマーとし、(D) 成分を TETRAD-C とし、(E) 成分を配合せずに試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 12〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分を製造例 3 で得られたオリゴマーとし、(D) 成分を配合せず、(E) 成分をビニルトリス (β-メトキシエトキシ) シラン (日本ユニカー (株) 製、商品名: A-172) として試験片を作製し、接着性を評価した。

【0062】比較例 7~12 の結果を表 4 に示す。

〔実施例 13〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分として製造例 5 のポリオキシプロピレンオリゴマーを使用し、(D) 成分を TETRAD-C、(E) 成分を γ-イソシアナートプロピルシラン (チッソ (株) 製、商品名: I-7840) として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 13〕実施例 13 から (D)、(E) 成分を除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価し

た。

〔比較例 14〕実施例 13 から (E) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 15〕実施例 13 から (D) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例 14〕実施例 1 と同様にして、ただし (A) 成分として製造例 6 のポリカプロラク톤オリゴマーを使用し、(D) 成分を TETRAD-C、(E) 成分を γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン (日本ユニカー (株) 製、商品名: A-187) として試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 16〕実施例 14 から (D)、(E) 成分を除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 17〕実施例 14 から (E) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 18〕実施例 14 から (D) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔実施例 15〕実施例 1 と同様にして、ただし、(A) 成分として製造例 7 のアクリルオリゴマーを使用し、(D) 成分として TETRAD-X、(E) 成分としてビニルトリス (β-メトキシエトキシ) シラン (日本ユニカー (株) 製、商品名: A-172) を使用して試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 19〕実施例 15 から (D)、(E) 成分を除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 20〕実施例 15 から (E) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

〔比較例 21〕実施例 15 から (D) 成分のみを除いた組成物を用いて試験片を作製し、接着性を評価した。

【0063】実施例 13 から 15 及び比較例 13 から 20 の接着性測定結果を表 5 に示す。

【0064】

〔表 1〕

表 1

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6
基盤目テープ法による接着性評価							
銅	常態	10	2	10	10	4	10
	耐湿性試験	4	0	0	2	0	0
アルミ	常態	10	10	10	10	10	10
	耐湿性試験	8	10	10	10	10	8
ガラス	常態	10	10	10	10	10	10
	耐湿性試験	10	4	10	10	6	10
引張剪断接着強度 (kgf/cm ²)							
銅	常態	14.5	8.3	15.6	14.8	11.9	13.5
	耐湿性試験	10.3	6.1	9.6	8.2	8.6	7.5
アルミ	常態	19.6	18.2	17.3	19.5	16.2	17.5
	耐湿性試験	18.5	17.6	17.1	18.3	13.6	15.9

【0065】

* * [表2]

表 2

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
基盤目テープ法による接着性評価							
銅	常態	0	10	10	0	0	0
	耐湿性試験	0	0	0	0	0	0
アルミ	常態	0	0	10	10	0	0
	耐湿性試験	0	0	0	0	0	0
ガラス	常態	0	10	10	10	10	10
	耐湿性試験	0	0	0	2	10	0
引張剪断接着強度 (kgf/cm ²)							
銅	常態	6.3	10.3	14.2	8.1	2.7	7.3
	耐湿性試験	6.9	5.3	9.6	7.5	2.7	4.5
アルミ	常態	5.7	12.6	11.3	15.8	5.8	13.4
	耐湿性試験	3.4	8.2	9.3	10.2	4.9	10.4

【0066】

【表3】

表 3

		実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12
基盤目テープ法による接着性評価							
銅	常態	10	2	10	10	4	10
	PCT後	2	0	0	0	0	0
アルミニウム	常態	10	10	10	10	10	10
	PCT後	8	10	8	10	10	10
ガラス	常態	10	10	10	10	10	10
	PCT後	10	6	10	8	6	10
引張剪断接着強度 (kgf/cm ²)							
銅	常態	15.7	9.2	14.5	15.3	10.9	14.8
	PCT後	9.1	5.9	8.8	7.6	7.7	6.9
アルミニウム	常態	15.6	17.6	15.3	16.5	15.6	16.6
	PCT後	16.2	16.3	15.5	14.9	13.9	16.6

【0067】

* * 【表4】

表 4

		比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
基盤目テープ法による接着性評価							
銅	常態	0	10	2	0	8	0
	PCT後	0	0	0	0	0	0
アルミニウム	常態	0	0	0	0	0	0
	PCT後	0	0	0	0	0	0
ガラス	常態	0	10	10	0	10	10
	PCT後	0	0	10	0	0	8
引張剪断接着強度 (kgf/cm ²)							
銅	常態	6.1	9.6	6.5	4.6	11.6	8.1
	PCT後	5.9	5.1	4.7	3.1	6.5	3.2
アルミニウム	常態	6.3	11.3	8.5	4.6	10.7	10.3
	PCT後	4.5	8.4	7.9	4.7	9.6	10.4

【0068】

【表5】

表 5

		実施例13	比較例13	比較例14	比較例15	実施例14	比較例16	比較例17	比較例18	実施例15	比較例19	比較例20	比較例21
基板目テーパー法による接着性評価													
銅	常態	10	0	10	10	10	0	6	6	10	4	8	10
	PCT後	5	0	0	0	3	0	0	0	10	0	0	0
アルミニウム	常態	10	0	0	2	10	0	4	0	10	6	8	8
	PCT後	9	0	0	0	9	0	0	0	10	0	4	0
ガラス	常態	10	0	6	8	10	0	8	8	10	6	10	10
	PCT後	10	0	0	4	10	0	0	0	10	0	6	6

27

(15)

特開平8-134360

28

【0069】表1～5の結果より以下のことが明らかとなった。

〔1〕(A)、(B)、(C)成分のみでは接着性がなく、これに(D)成分または(E)成分のいずれか一方のみを添加した場合は接着性の改良効果は見られるが不十分であった。

〔2〕(A)、(B)、(C)成分に(D)成分と(E)成分の両方を添加することによって常態及びプレッシャークッカー処理後の接着性を大幅に改良することが可能であった。

10 【0070】以上のような本発明の硬化性組成物は各種の被着体に対して優れた接着性を示した。

【0071】

20 【発明の効果】以上の説明及び表1～5の比較からも明らかなように本発明の硬化性組成物は、高い硬化性を有することに加え、各種基材との接着性が良く湿熱処理後も接着性がほとんど低下しないため、従来接着力及び接着保持力が不足して使用できなかった分野にも使用できるようになった。該硬化物はゴム状弾性体であるために低応力性であり、産業上の利用分野としては、電気・電子部品等の封止材用組成物や各種コーティング材、ガスケット材料、シーリング材、成形材料、塗料用の組成物として用いることができる。中でも炭化水素系骨格のものは、さらに低透湿性、低吸湿性、耐熱性、耐候性等を有し、半導体素子のドリップコーティングやボッティング用液状封止材、コンデンサー等の各種電子部品のボッティング材、コーティング材、太陽電池裏面封止材の電子部品用の封止材等の組成物として用いることができる。

30

40

フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 K 5/54				
C 0 8 L 83/05	LRM			
H 0 1 L 23/29				
23/31				

(72)発明者 平林 珠
兵庫県神戸市須磨区東落合3-6-26 コ
スモハイツ東落合104

(72)発明者 濱口 茂樹
兵庫県神戸市中央区港島中町3-1 公団42
- 501